

18.10.2004

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

REC'D 13 JAN 2005

WIPO

PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日            2 0 0 4 年   3 月 2 3 日  
Date of Application:

出 願 番 号            特 願 2 0 0 4 - 0 8 4 8 3 5  
Application Number:  
[ST. 10/C] :            [ J P 2 0 0 4 - 0 8 4 8 3 5 ]

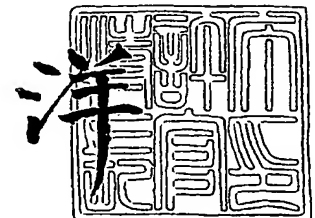
出      願      人            原 子 燃 料 工 業 株 式 有 限 公 司  
Applicant(s):

**PRIORITY DOCUMENT**  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 4 年 1 2 月 2 2 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川



BEST AVAILABLE COPY

出証番号   出証特 2 0 0 4 - 3 1 0 7 4 3 5

【書類名】 特許願  
【整理番号】 PJ30053  
【提出日】 平成16年 3月23日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 G21C 3/62  
C01G 43/025

【発明者】  
【住所又は居所】 茨城県那珂郡東海村村松 1 2 2 0 - 6 3 9  
【氏名】 本田 真樹

【特許出願人】  
【識別番号】 000165697  
【氏名又は名称】 原子燃料工業株式会社

【代理人】  
【識別番号】 100092082  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 佐藤 正年

【代理人】  
【識別番号】 100099586  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 佐藤 年哉

【手数料の表示】  
【予納台帳番号】 007629  
【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】  
【物件名】 特許請求の範囲 1  
【物件名】 明細書 1  
【物件名】 図面 1  
【物件名】 要約書 1  
【包括委任状番号】 9807577

**【書類名】 特許請求の範囲****【請求項 1】**

アンモニアとの接触でゲル化反応する添加剤を含む水溶液と硝酸ウラニル液とから調製されてなる滴下原液をノズルから滴下する滴下手段と、前記ノズルから滴下された液滴を受けて前記ゲル化反応を生じせしめ、液滴をゲル粒子化させるための液槽とを備えた高温ガス炉用燃料粒子の製造装置において、

前記ノズルから滴下された液滴が前記液槽の液面に達するまでの落下経路途中で該液滴にアンモニアを接触させる液滴表面ゲル化手段を備えていることを特徴とする高温ガス炉用燃料粒子の製造装置。

**【請求項 2】**

前記液滴表面ゲル化手段は、落下中の液滴に対してほぼ水平方向からアンモニアを吹き付けるアンモニア噴射ノズル機構を有することを特徴とする請求項 1 に記載の高温ガス炉用燃料粒子の製造装置。

**【請求項 3】**

前記液滴表面ゲル化手段は、前記アンモニア噴射ノズルに対して前記液滴の落下経路を挟んだ対向位置に設けられ、前記アンモニア噴射ノズルから噴射されて前記落下経路を越えたアンモニア気流を排気する排気機構を更に備えたことを特徴とする請求項 2 に記載の高温ガス炉用燃料粒子の製造装置。

**【請求項 4】**

前記液槽が、アンモニア水溶液を収容しているものであることを特徴とする請求項 1 ～ 3 のいずれか 1 項に記載の高温ガス炉用燃料粒子の製造装置。

**【請求項 5】**

前記液槽のアンモニア水溶液面上に設けられたアンモニア充満領域をさらに備え、前記アンモニア噴射ノズル機構と前記排気機構が、このアンモニア充満領域の上方に配置されていることを特徴とする請求項 4 に記載の高温ガス炉用燃料粒子の製造装置。

**【請求項 6】**

前記滴下原液が加熱によりアンモニアを発生するアンモニアドナーをさらに含むものであり、前記液槽が予め定められた温度に加温されている加熱液を収容しているものであることを特徴とする請求項 1 ～ 請求項 3 のいずれか 1 項に記載の高温ガス炉用燃料粒子の製造装置。

**【請求項 7】**

アンモニアとの接触でゲル化反応する添加剤を含む水溶液と硝酸ウラニル液とから調製されてなる滴下原液を得る原液調製工程と、前記原液をノズルから下方の液槽に向けて滴下して前記滴下原液の球状液滴を形成させる液滴形成工程と、前記液槽中で液滴をゲル化してゲル状の重ウラン酸アンモニウム粒子を形成させる凝固工程とを備えた高温ガス炉用燃料粒子の製造方法において、

前記液滴形成工程で形成された球状液滴に対して、前記液槽の液面に達する前にアンモニアに接触させる液滴表面ゲル化工程を備えていることを特徴とする高温ガス炉用燃料粒子の製造方法。

**【請求項 8】**

前記液滴表面ゲル化工程は、落下中の液滴に対してアンモニアを吹き付ける工程を含むことを特徴とする請求項 7 に記載の高温ガス炉用燃料粒子の製造方法。

**【請求項 9】**

前記液滴表面ゲル化工程は、前記アンモニアの吹き付け後にアンモニア充満領域を通過させる工程をさらに含むことを特徴とする請求項 8 に記載の高温ガス炉用燃料粒子の製造方法。

## 【書類名】明細書

## 【発明の名称】高温ガス炉用燃料粒子の製造装置および製造方法

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、例えば高温ガス炉の装荷燃料を構成する被覆燃料粒子用の燃料粒子の製造装置および製造方法に関するものである。

## 【背景技術】

## 【0002】

高温ガス炉は、燃料を含む炉心構造を熱容量が大きく高温健全性の良好な黒鉛で形成し、ヘリウム等の高温下でも化学的反應の起こらないガス冷却材を用いることにより、固有の安全性が高く、高い出口温度のガス冷却材を取り出すことの可能な原子炉であり、得られる約900℃の高温熱は、発電はもちろんのこと水素製造や化学プラント等幅広い分野での熱利用を可能にするものである。

## 【0003】

このような高温ガス炉では、燃料要素として、粒状の燃料を埋め込んだ黒鉛成型物が使用されている。この燃料は、通常、二酸化ウランをセラミックス状に焼結した直径約350～650 $\mu$ mの燃料粒子の外表面に複数の被覆層を形成してなる被覆燃料粒子である。

## 【0004】

例えば、第1被覆層として密度約1g/cm<sup>3</sup>の低密度熱分解炭素層を形成し、第2被覆層として密度約1.8g/cm<sup>3</sup>の高密度熱分解炭素層を形成し、さらに第3被覆層として密度約3.2g/cm<sup>3</sup>炭化珪素(SiC)層を、また第4被覆層として密度約1.8g/cm<sup>3</sup>の高密度熱分解炭素層を形成した計4層の被覆を施されたものが一般的である。

## 【0005】

第1被覆層はガス状の核分裂生成物のガス留めとしての機能及び燃料粒子の変形を吸収する緩衝部としての機能を併せ持つものである。また第2被覆層はでガス状核分裂生成物の保持機能を有し、第3被覆層は固体状核分裂生成物の保持機能を有すると共に、被覆層の主要な強度部材である。第4被覆層は、第2被覆層と同様のガス状核分裂生成物の保持機能と共に第3被覆層の保護層としての機能も持っている。

## 【0006】

上記のような一般的な被覆燃料粒子の直径は約500～1000 $\mu$ mである。被覆燃料粒子は黒鉛母材中に分散させ一定形状の燃料コンパクトの形に成型加工され、さらに黒鉛でできた筒にコンパクトを一定数量入れ、上下に栓をした燃料棒の形にされる。最終的に燃料棒は、六角柱型黒鉛ブロックの複数の挿入口に入れられ、この六角柱型黒鉛ブロックを多数個、ハニカム配列に複数段重ねて炉心を構成している。

## 【0007】

また、被覆層が形成されて被覆燃料粒子とされる燃料粒子の製造には、大量形成が可能な方法として振動滴下によるゲル状の粒子を得る外部ゲル化法が用いられている(例えば、特許文献1参照。)

## 【0008】

具体的には、まず、酸化ウランの粉末を硝酸に溶かし硝酸ウラニル原液とし、この硝酸ウラニル原液に純水、添加剤を加え攪拌することにより滴下原液とする。添加剤は、滴下された硝酸ウラニルの液滴が落下中に自身の表面張力により真球状になるようにする増粘剤であると同時にアンモニウムとの接触により原液をゲル化せしめるために添加されるものであり、例えばポリビニルアルコール樹脂、アルカリ条件下でゲル化する性質を持つ樹脂、ポリエチレングリコール、メトローズなどを挙げることができる。

## 【0009】

上記のように調製された滴下原液は所定の温度に冷却され粘度を調整した後、細径の滴下ノズルを振動させることによりアンモニア水溶液中に滴下される。アンモニア水溶液中へ液滴となって入った原液は、硝酸ウラニルがアンモニアと十分に反応させられると同時に前記添加剤がゲル化され、重ウラン酸アンモニウム(ADU)を含むゲル状の粒子とな

る。

#### 【0010】

また、上記のような外部ゲル化法の他に、内部ゲル化法によってもADUゲル粒子を得ることができる。この内部ゲル化法は、滴下原液中にヘキサメチレンテトラミンなどのアンモニアドナー、即ち加熱によって分解してアンモニアを発生する化学物質を添加しておき、この原液を100℃程度に加温されているパラフィンオイルやシリコンオイル等の液槽に滴下することによって、液槽中での加熱で液滴内部よりゲル化反応を生じせしめ、ゲル粒子を形成するものである。

#### 【0011】

以上のようなゲル化法で得られたADUゲル粒子は、大気中で焙焼され、水分および添加剤が除去されて三酸化ウラン粒子となり、さらに還元・焼結されることにより高密度のセラミックス状二酸化ウランからなる球状の燃料粒子となる。

#### 【0012】

さらに、この燃料粒子を用いた被覆燃料粒子の製造工程としては、該燃料粒子を流動床に装荷し、被覆ガスを熱分解させることにより被覆を施す方法が挙げられる。例えば、第1被覆層の低密度炭素層の場合は約1400℃でアセチレン( $C_2H_2$ )を熱分解して被覆を施し、第2および第4被覆層の高密度熱分解炭素層の場合は約1400℃でプロピレン( $C_3H_6$ )を熱分解して行う。第3被覆層のSiC層の場合は約1600℃でメチルトリクロロシラン( $CH_3SiCl_3$ )を熱分解して被覆する。

#### 【0013】

一般的な燃料コンパクトは、被覆燃料粒子を黒鉛粉末、粘結剤等からなる黒鉛マトリックス材とともに中空円筒形または円筒形にプレス成型またはモールド成型した後、焼成して得られる。

#### 【0014】

【特許文献1】特開平9-127291号公報(図7)

#### 【発明の開示】

#### 【発明が解決しようとする課題】

#### 【0015】

しかしながら、上記の様な振動滴下による外部ゲル化法又は内部ゲル化法を用いた燃料粒子の製造方法では、滴下原液をアンモニア水溶液中又はパラフィンオイル等の中に滴下した際の液面衝突時の衝撃により液滴の多くは変形してしまい、その変形状態のままゲル化された粒子となり、結果的に真球度が悪い燃料粒子しか得られなかった。

#### 【0016】

そこで、このような変形を防止する手段として、硝酸ウラニル溶液の濃度を調整してアンモニア水溶液面に衝突する際の衝撃に耐える強度を与えることや、アンモニア水溶液面までの滴下距離を小さくして衝撃力を低減させること、また、液滴径を小さくすることなどが考えられた。

#### 【0017】

しかし、硝酸ウラニル溶液の濃度等の調製を行っても、滴下の際の衝撃に完全に抗する強度は得られず、やはり完全な球形を維持することができず、あまり真球度の良くない物質しか得られなかった。

#### 【0018】

また、アンモニア水溶液面と滴下開始位置との距離を短くした場合、本来液滴を真球状にするのは落下中の表面張力によるものであるため、液滴を真球度の良い形状にするのに必要な落下距離が確保できなくなり、着水の衝撃を低下させることが可能でも、結果としてあまり真球度の良い物質は得られない。さらに滴下装置がアンモニア発生源に近いと、装置内部で原液のゲル化反応が発生して滴下が阻害される恐れもある。

#### 【0019】

また、液滴径を小さくして滴下する方法では、目的とする燃料粒子の粒径がそれに見合う大きさであれば問題無いものの、それ以外では適用できないという問題があった。以上

のように、従来の外部ゲル化法では、真球度の良い燃料粒子を得るのは困難であった。

#### 【0020】

本発明の目的は、上記問題点に鑑み、外部ゲル化法又は内部ゲル化法を用いたADUゲル粒子の形成の際に、滴下液面への衝突時に液滴に変形が生じ難く、従来より真球度の良い燃料粒子の製造が可能となる高温ガス炉用燃料粒子の製造装置および製造方法を提供することにある。

#### 【課題を解決するための手段】

#### 【0021】

上記目的を達成するため、請求項1に記載の発明に係る高温ガス炉用燃料粒子の製造装置は、アンモニアとの接触でゲル化反応する添加剤を含む水溶液と硝酸ウラニル液とから調製されてなる滴下原液をノズルから滴下する滴下手段と、前記ノズルから滴下された液滴を受けて前記ゲル化反応を生じせしめ、液滴をゲル粒子化させるための液槽とを備えた高温ガス炉用燃料粒子の製造装置において、前記ノズルから滴下された液滴が前記液槽の液面に達するまでの落下経路途中で該液滴にアンモニアを接触させる液滴表面ゲル化手段を備えているものである。

#### 【0022】

請求項2に記載の発明に係る高温ガス炉用燃料粒子の製造装置は、請求項1に記載の高温ガス炉用燃料粒子の製造装置において、前記液滴表面ゲル化手段は、落下中の液滴に対してほぼ水平方向からアンモニアを吹き付けるアンモニア噴射ノズル機構を有するものである。

#### 【0023】

請求項3に記載の発明に係る高温ガス炉用燃料粒子の製造装置は、請求項2に記載の高温ガス炉用燃料粒子の製造装置において、前記液滴表面ゲル化手段は、前記アンモニア噴射ノズルに対して前記液滴の落下経路を挟んだ対向位置に設けられ、前記アンモニア噴射ノズルから噴射されて前記落下経路を越えたアンモニア気流を排気する排気機構を更に備えたものである。

#### 【0024】

請求項4に記載の発明に係る高温ガス炉用燃料粒子の製造方法は、請求項1～請求項3のいずれか1項に記載の高温ガス炉用燃料粒子の製造装置において、前記液槽が、アンモニア水溶液を収容しているものである。

#### 【0025】

請求項5に記載の発明に係る高温ガス炉用燃料粒子の製造方法は、請求項4に記載の高温ガス炉用燃料粒子の製造方法において、前記液槽のアンモニア水溶液面上に設けられたアンモニア充満領域をさらに備え、前記アンモニア噴射ノズル機構と前記排気機構が、このアンモニア充満領域の上方に配置されているものである。

#### 【0026】

請求項6に記載の発明に係る高温ガス炉用燃料粒子の製造装置は、請求項1～請求項3のいずれか1項に記載の高温ガス炉用燃料粒子の製造装置において、前記滴下原液が加熱によりアンモニアを発生するアンモニアドナーをさらに含むものであり、前記液槽が予め定められた温度に加熱されている加熱液を収容しているものである。

#### 【0027】

請求項7に記載の発明に係る高温ガス炉用燃料粒子の製造方法は、アンモニアとの接触でゲル化反応する添加剤を含む水溶液と硝酸ウラニル液とから調製されてなる滴下原液を得る原液調製工程と、前記原液をノズルから下方の液槽に向けて滴下して前記滴下原液の球状液滴を形成させる液滴形成工程と、前記液槽中で液滴をゲル化してゲル状の重ウラン酸アンモニウム粒子を形成させる凝固工程とを備えた高温ガス炉用燃料粒子の製造方法において、前記液滴形成工程で形成された球状液滴に対して、前記液槽の液面に達する前にアンモニアに接触させる液滴表面ゲル化工程を備えているものである。

#### 【0028】

請求項8に記載の発明に係る高温ガス炉用燃料粒子の製造方法は、請求項7に記載の高

温ガス炉用燃料粒子の製造方法において、前記液滴表面ゲル化工程は、落下中の液滴に対してアンモニアを吹き付ける工程を含むものである。

#### 【0029】

請求項9に記載の発明に係る高温ガス炉用燃料粒子の製造方法は、請求項8に記載の高温ガス炉用燃料粒子の製造方法において、前記液滴表面ゲル化工程は、前記アンモニアの吹き付け後にアンモニア充滿領域を通過させる工程をさらに含むものである。

#### 【発明の効果】

#### 【0030】

本発明の製造装置によれば、ゲル化助剤としての添加剤と硝酸ウラニル液を含む滴下原液を滴下手段のノズルから滴下した液滴が、滴下原液にゲル化反応を生じせしめて液滴をゲル粒子化するための液槽の液面に達するまでの落下経路途中でその液滴にアンモニアを接触させる液滴表面ゲル化手段を備えたものであるため、該手段によって液滴はアンモニア水溶液面に達するまでに表面からのアンモニアとの接触によりゲル化反応が進められて液滴外表面にゲル層が形成させられるので、このゲル層によって液滴の真球形状がある程度固定される。従って、液面への衝突時の衝撃によっても液滴の変形は抑えられその真球形状が維持されたまま液槽に入ることができるため、液槽内でゲル化反応が完了すると真球度の良いゲル状重ウラン酸アンモニウム粒子（ADUゲル粒子）となり、最終的に得られる燃料粒子を真球度の良いものにできるという効果がある。

#### 【0031】

また、本発明の製造方法によれば、ゲル化助剤としての添加剤と硝酸ウラニル液を含む滴下原液をノズルから下方の液槽に向けて滴下する液滴形成工程で形成された球状液滴に対して、液槽の液面に達する前にアンモニアに接触させる液滴表面ゲル化工程を設けたものであるため、該工程にて液槽の液面に達するまでにアンモニアとの接触により液滴に表面からゲル化反応を進めてその外表面にゲル層を形成させることができるので、このゲル層によって液滴の真球形状をある程度固定することができる。従って、液面への衝突時に液滴の衝撃による変形を抑えて真球形状を維持したまま液槽に入り、液槽内で真球度の良いゲル状重ウラン酸アンモニウム粒子（ADUゲル粒子）を形成することができ、最終的に真球度の良い燃料粒子を製造できるという効果がある。

#### 【発明を実施するための最良の形態】

#### 【0032】

本発明の高温ガス炉用燃料粒子の製造方法においては、原液調製工程にてアンモニアとの接触でゲル化反応する添加剤を含む水溶液と硝酸ウラニル液とから調製されてなる滴下原液を、液滴形成工程にてノズルから下方の液槽に向けて滴下して原液の球状液滴を形成させるものであり、液滴表面ゲル化工程として、球状液滴に対して液槽の液面に達する前にアンモニアに接触させるものであるため、球状液滴は、このアンモニアとの接触により表面でゲル化反応が進行させられて液滴外表面にゲル層が形成される。

#### 【0033】

従って、形成されたゲル層が外殻として液滴の真球に近い球形状を固定するため、液滴は球形状を維持したまま、液面での衝突時の衝撃で変形を生じることなく液槽内の液中に入り、凝固工程において、外部ゲル化法の場合にはアンモニア水溶液が収容された液槽中で、また内部ゲル化法の場合には滴下原液中にアンモニアドナーを含むものとして例えば100℃程度に加温されたパラフィンオイルやシリコンオイル等の液槽中で、液滴中心まで完全にゲル化され、真球度の良いゲル状の重ウラン酸アンモニウム粒子（以下、ADUゲル粒子と記す）が形成される。このようにして得られた真球度の良いADUゲル粒子から、その後の熱処理工程等の所定工程を経て、真球度の良い燃料粒子が製造される。

#### 【0034】

また、上記のように液槽の液面に達する前に外殻としての外表面ゲル層により球形状が固定された液滴は、液滴のまま着水した場合より速やかに液槽内を沈降するため互いに接触し難く、また振動滴下により高速で多量の液滴が次々とアンモニア水溶液中へ滴下されて液滴同士が接触したとしても、互いに結合し難いため、液滴同士が結合した状態で粒子

化するものは低減され、結果として粒径の均一なADUゲル粒子を得ることができる。

【0035】

なお、液滴表面ゲル化工程としては、例えば、落下中の液滴に対してアンモニアを吹き付ける方法が、短時間で効率よく液滴の全表面にアンモニアを接触させる好適な方法として挙げられる。

【0036】

また、落下中の液滴に対するアンモニアの接触時間が長いほど、液滴外表面のゲル層の形成はより確実なものとなり、またゲル層の厚みも大きくなって外殻としての強度も向上し、アンモニア水溶液面への衝突時の衝撃に対してより真球形状維持効果が高くなることから、上記のようなアンモニアの吹き付けに加えて、アンモニア充満領域を通過させる工程をさらに設ければ、より液滴の真球形状の固定が確実となり望ましい。

【0037】

以上のような製造方法を実現できる製造装置としては、アンモニアとの接触でゲル化反応する添加剤を含む水溶液と硝酸ウラニル液とから調製されてなる滴下原液を、滴下手段において前記液槽上に位置決めされるノズルから液槽へ滴下し、ノズルから滴下された液滴が液槽の液面に達するまでの落下経路途中で液滴にアンモニアを接触させる液滴表面ゲル化手段を備えたものとすれば良い。なお、液滴表面ゲル化手段による液滴へのアンモニア接触開始位置は、ノズル手段から滴下された液滴の表面張力による真球形成が充分成される落下距離を確保できる位置とする。

【0038】

本装置において、滴下手段のノズルから滴下された液滴は、液槽内の液面に衝突する前にアンモニアに接触させられ、表面でゲル化反応が進んで外表面にゲル層が形成されたものとなる。即ち、液滴は上記ゲル層が外殻となってその真球形状が固定されるため、液槽内の液面への衝突時に衝撃で変形することなくその真球形状が維持されたまま液槽内へ入って沈降していくことができる。

【0039】

従って、液滴は液槽内で中心部までゲル化反応が進み、完了時には真球度の良いADUゲル粒子となると同時に、液槽内落下中に液滴同士が接しても既に液滴表面はゲル化されているため、液滴同士が結合することなく、粒径の揃ったADUゲル粒子が得られる。即ち、このような真球度が良く粒径が均一なADUゲル粒子から最終的に得られる燃料粒子も、真球度が良く粒径が均一なものとなる。

【0040】

本発明は、以上のような装置において、外部ゲル化法の場合では液槽内にアンモニア水溶液が収容され、内部ゲル化法の場合では液槽内に加熱のためのオイルが収容されて且つ滴下原液に加熱によりアンモニアを発生するアンモニアドナーをさらに添加しておくという違いがあるだけでいずれの場合にも有効である。

【0041】

また、本装置の液滴表面ゲル化手段としては、落下中の液滴にアンモニアを接触せしめる機構のものであれば広く採用可能である。例えば、落下中の液滴に対してほぼ水平方向からアンモニアを吹き付けるアンモニア噴射ノズル機構を備えたものとすれば、所定位置でノズルからアンモニアを噴射するという簡便な構成で液滴の表面全体的にアンモニアを接触させることができる。

【0042】

また、落下中の液滴に対するアンモニアの接触時間が長いほど、液滴外表面のゲル層の形成はより確実なものとなり、またゲル層の厚みも大きくなって外殻としての強度も向上し、液槽内の液面への衝突時の衝撃に対してより真球形状維持効果が高くなる。そこで、上記のようなアンモニア噴射ノズル機構によるアンモニアの吹き付けに加えて、その下部の液滴落下領域にアンモニアとの接触領域をさらに設ければ、より液滴の真球形状の固定が確実となる。

【0043】



例えば、外部ゲル化法の場合、液槽内にはアンモニア水溶液が収容されているが、このアンモニア水溶液面上にアンモニア充満領域を設ける構成とすれば、アンモニアが吹き付けられた後の液滴は、槽内に入ってからアンモニア水溶液面に達するまでの間、アンモニア雰囲気中を通過することとなる。即ち、この構成では、別体の設備を設けることなく同じアンモニア水溶液収納用の液槽を利用するという簡便な構成でさらなる液滴のアンモニア接触時間を確保することができる。

#### 【0044】

なお、このように液槽の上部のアンモニア水溶液面上にアンモニア充満領域を形成する場合、アンモニアをできるだけ槽内に封じ込めるように、液槽は落下してくる液滴を受け入れるための上面開口部以外は閉鎖状態とすることが好ましい。

#### 【0045】

また、上記アンモニア噴射ノズル機構は、そのノズルから噴射されたアンモニアが、滴下装置内に浸入し、装置内で原液をゲル化させてしまうことのないように、滴下装置とアンモニア噴射ノズルとの位置関係を設定することや、あるいは雰囲気調整によって実質的にアンモニアの滴下装置側への移動を規制することが望ましい。

#### 【0046】

例えば、アンモニア噴射ノズルに対して液滴の落下経路を挟んだ対向位置に、前記アンモニア噴射ノズルから噴射されて落下経路を越えたアンモニア気流を吸引して本装置外の所定領域へ排出する排気機構を更に設ける構成が挙げられる。このアンモニア噴射ノズルと排気機構との間には強制的にアンモニア流がエアカーテン状に形成されるため、このエアカーテンが前記アンモニア充満領域の上方で、液槽の前記開口部の直上に形成されるように装置の所定構成部位を配置すれば、アンモニア噴射ノズルから噴射されたアンモニアの滴下装置側への移動が防止できると同時に、エアカーテンによる液槽上部のアンモニア充満領域内へのアンモニアの封じ込め効果も得られる。

#### 【0047】

また、液槽内のアンモニア水溶液中では、ADUゲル粒子の生成反応の進行に伴ってアンモニアが消費されてその濃度が低下してしまうが、上記のように液槽上部にアンモニア充満領域が設けられていれば、該領域との接触面であるアンモニア水溶液面からアンモニアが補給されるため、振動滴下により多量の液滴を順次滴下していても何ら反応に支障は生じない。

#### 【0048】

以上のような装置構成により得られたADUゲル粒子は、次の乾燥、焙焼、焼結などの所定の工程に応じた熱処理装置部を経て真球度が良く且つ粒径の揃った燃料粒子となる。

#### 【実施例】

#### 【0049】

本発明の一実施例による高温ガス炉用燃料粒子の製造装置として、外部ゲル化法によるADUゲル粒子製造部の概略構成を図1に示す。該製造部は、主に、アンモニア水溶液7を収容した液槽6と、アンモニアとの接触でゲル化反応する添加剤を含む水溶液と硝酸ウラン液とから調整されてなる滴下原液が供給される供給源T1と、該供給源T1からの滴下原液を液槽6の上方に位置決めされる振動ノズル2から液槽へ滴下する振動滴下装置1とを備えたものである。

#### 【0050】

振動滴下装置1は、供給源T1から供給される滴下原液の流量を制御するためのポンプとノズル2を振動させる振動機構とを有し、所望の液滴径に応じて予め決定された振動数で発振する発振器とこの発振器の振動数を拡大するアンプと、アンプにより増幅された振動を受け取ってノズルを振動させる加振器を備えているものである。

#### 【0051】

また、本製造部では、液滴表面ゲル化手段として、液槽6の上で液滴10に対してほぼ水平方向からアンモニアを吹き付けるアンモニア噴射ノズル機構3と液槽6の上部のアンモニア水溶液面上に設けられたアンモニア充満領域8とを備えたものである。液槽6は、

液滴を受け入れる開口部 9 以外は閉鎖状態としてアンモニア充満領域 8 を確保している。また本実施例では、これら液槽 6 内のアンモニア充満領域 8 とアンモニア噴射ノズル機構 3 へは同じ供給源 T 2 からアンモニアを供給するものとした。

#### 【0052】

さらに、本製造部においては、アンモニア噴射ノズル機構 3 に対して液滴の落下経路を挟んだ対向位置に、該機構のノズルから噴射されて液滴落下経路を越えたアンモニア流を吸引して排気する排気機構 5 を設けることによって、液槽 6 の開口 9 の直上にアンモニアのエアカーテン 4 を形成し、噴射後のアンモニアが振動滴下装置 1 内に入り込んで装置内で原液をゲル化させて滴下工程を阻害する問題を回避すると共に、アンモニア充満領域 8 のアンモニアが液槽 6 から出てしまうのを封じ込めるものとした。

#### 【0053】

以上の構成を備えた A D U ゲル粒子製造部では、振動ノズル 2 から滴下され落下しながらその表面張力により球状となった液滴 10 は、液槽 6 の開口部 9 に入る前にアンモニア噴射ノズル機構 3 から噴射されるアンモニアが吹き付けられ、液滴表面でゲル化反応が生じて外表面にゲル層が形成され、その後開口部 9 から液槽 6 内へ入り、アンモニア水溶液面に達するまでのあいだアンモニア充満領域 8 を通過し、その間、さらに液滴表面でのゲル化反応が進んで外殻としてのゲル層が強化される。

#### 【0054】

このように、外表面にゲル層の外殻が形成された液滴 10 は、その球形状が固定されており、アンモニア水溶液面に衝突した際の衝撃でも殆ど変形することなく、真球度の良い球形状を維持したままアンモニア水溶液 7 中を沈降していき、中心部までのゲル化反応が進んで完了した時点でゲル状の A D U 粒子が得られる。

#### 【0055】

このように表面ゲル層の外殻が形成された液滴 10 は、外殻のない液滴のまま着水する場合よりも速やかにアンモニア水溶液中を沈降するので液滴同士が接触し難く、また振動滴下により多量の液滴 10 が次々にアンモニア水溶液 7 中に入っていて液滴同士が接触しても、それぞれの外殻（ゲル層）の存在により、互いに独立状態で結合することがなく、結果として得られる A D U ゲル粒子は真球度が良く粒径の均一なものとなる。

#### 【0056】

以上に説明した図 1 の製造部により実際に A D U ゲル粒子を形成した例を以下に説明する。まず、添加剤としてのポリビニルアルコール溶液と硝酸ウラニル液とから滴下原液を調製した。

#### 【0057】

本実施例では、振動ノズル 2 としてノズル径約 2 mm のものを用い、約 90 Hz の振動数でノズルを振動させて原液を滴下する設定とした。またアンモニア噴射ノズル機構 3 によるアンモニア吹き付け位置は、ノズル 2 の下端から約 40 mm 下方に設定し、落下中の液滴 10 が球形状となるのに十分な距離を確保した。さらに、液槽 6 の開口部 9 からアンモニア水溶液面までの距離、即ちアンモニア充満領域 8 の距離を約 300 mm とした。

#### 【0058】

以上の条件により原液を滴下した。この滴下により直径がおおよそで約 0.07 mm の液滴が得られる。上記の如く、滴下後、球形状となった液滴 10 は、アンモニア噴射ノズル機構 3 によりアンモニアが吹き付けられ、その後液槽 6 内に開口部 9 から入り、アンモニア充満領域 8 を通過した後、アンモニア水溶液 7 中に入って沈降する。これら液滴 10 を、少なくともゲル化反応が完了するのに必要な所定凝固時間、そのまま液槽中に浸漬させることによって A D U ゲル粒子を得た。

#### 【0059】

ここで本実施例の比較例として、上記製造部のアンモニア噴射ノズル機構 3 によるアンモニア吹き付けを行うことなく、且つアンモニア充満領域 8 からアンモニアを除去した以外は本実施例と同じ条件で原液の滴下を行い従来タイプの A D U ゲル粒子を得た。

#### 【0060】

それぞれのADU粒子の真球度を求めた結果、従来タイプの比較例のものが約1.2であったのに対して、本実施例で得られたADU粒子では約1.08であり、大幅に真球度が向上したことが明らかとなった。従って、このように真球度の良いADUゲル粒子から所定の熱処理工程を経て得られる燃料粒子も、従来に比べて真球度がより良好なものとなる。

#### 【0061】

また、以上の実施例では、外部ゲル化法を用いた場合を説明したが、本発明は、内部ゲル化法を用いた場合も同様に有効である。内部ゲル化法の場合には、滴下原液供給源T1で調整される滴下原液にはヘキサメチレンテトラミンなどのアンモニアドナーをさらに添加し、液槽6内にはアンモニアドナーを加熱分解してアンモニアを発生せしめ得る高温に加温されているパラフィンオイル等を収容することによってADUゲル粒子製造部が構成できる。

#### 【0062】

この場合も、液槽6上方に配置されるアンモニア噴射ノズル機構3と排気機構5とで構成される液滴表面ゲル化手段によって、振動ノズル2から滴下されたアンモニアドナーを含む液滴10は、液槽内のオイル液面に達する前にアンモニア吹き付けで表面からゲル化反応が生じ、外表面にゲル層の外殻が形成されて、その球形状が固定される。従って液滴は液槽内のオイル液面に衝突した際の衝撃でも殆ど変形することなく、真球度の良い球形状を維持したままオイル中を沈降していき、加熱されて液滴内部でアンモニアが発生して中心部からのゲル化反応が進み、ゲル化反応が完了した時点で真球度の良いゲル状のADU粒子が得られる。

#### 【0063】

なお、本発明における滴下、アンモニア吹き付け位置、液槽のアンモニア水溶液面位置、また滴下振動数、温度、時間等の条件設定は、上記実施例に示したものに限るものではなく、用いる添加剤の種類や濃度、また所望の粒径、数量等に応じて適宜選択すればよい。また上記実施例では、振動滴下法を用いた場合を示したが、本発明はこれに限らず、例えば自然滴下法などを用いた場合も有効である。

#### 【図面の簡単な説明】

#### 【0064】

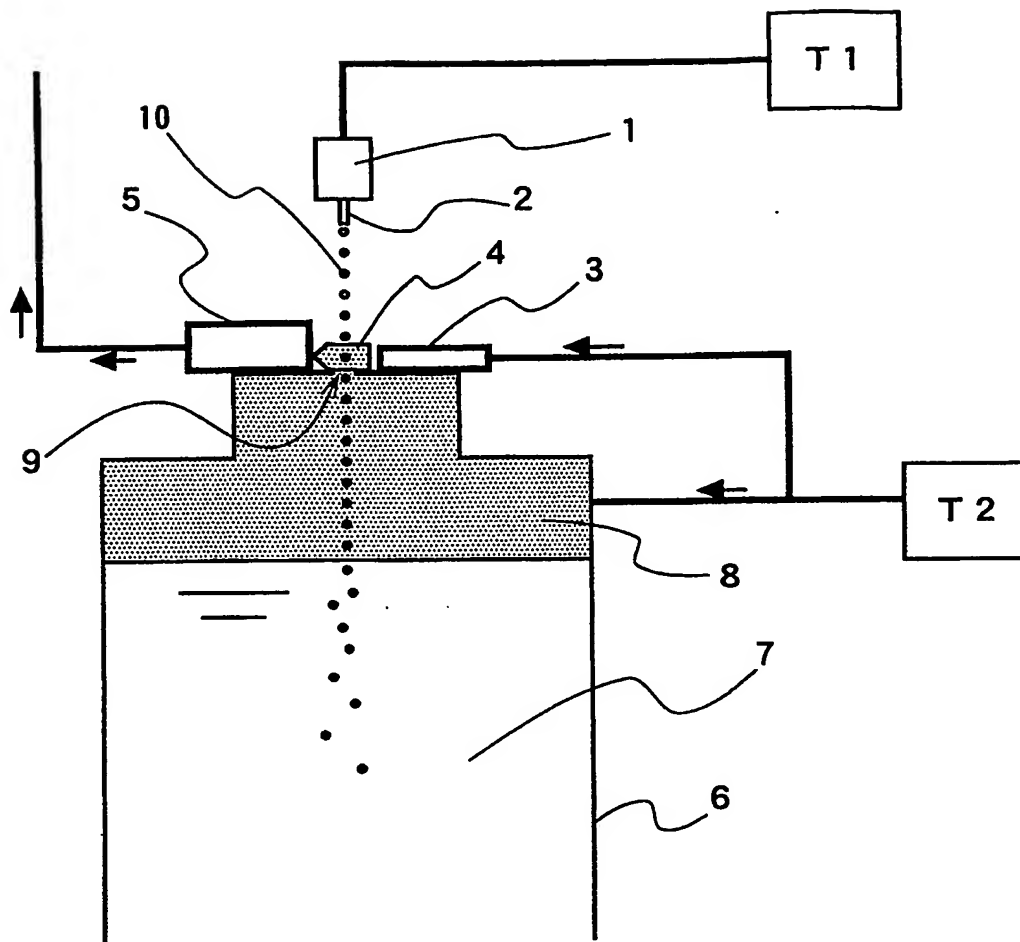
【図1】本発明に一実施例による高温ガス炉用燃料粒子の製造装置のADUゲル粒子製造部を説明する概略構成図である。

#### 【符号の説明】

#### 【0065】

- 1：振動滴下装置
- 2：振動ノズル
- 3：アンモニア噴射ノズル機構
- 4：エアカーテン
- 5：排気機構
- 6：液槽
- 7：アンモニア水溶液
- 8：アンモニア充満領域
- 9：開口部
- 10：液滴
- T1：滴下原液供給源
- T2：アンモニア供給源

【書類名】 図面  
【図 1】



## 【書類名】要約書

## 【要約】

【課題】 外部ゲル化法又は内部ゲル化法を用いたADUゲル状粒子の形成の際に、滴下液面への衝突時に液滴に変形が生じ難く、従来より真球度の良い燃料粒子の製造が可能となる高温ガス炉用燃料粒子の製造装置および製造方法の提供。

【解決手段】 アンモニアとの接触でゲル化反応する添加剤を含む水溶液と硝酸ウラニル液とから調整されてなる滴下原液をノズルから滴下する滴下手段と、前記ノズルから滴下された液滴を受けて前記ゲル化反応を生じせしめ、液滴をゲル粒子化させるための液槽を備えた高温ガス炉用燃料粒子の製造装置において、前記液滴が前記液槽の液面に達するまでの落下経路途中で液滴にアンモニアを接触させる液滴表面ゲル化手段を備えた。

【選択図】 図1

## 認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2004-084835
受付番号	50400477904
書類名	特許願
担当官	第一担当上席 0090
作成日	平成 16 年 3 月 29 日

## &lt;認定情報・付加情報&gt;

## 【特許出願人】

【識別番号】	000165697
【住所又は居所】	東京都港区三田三丁目 14 番 10 号
【氏名又は名称】	原子燃料工業株式会社

## 【代理人】

申請人

【識別番号】	100092082
【住所又は居所】	東京都港区虎ノ門 1 丁目 21 番 19 号 秀和第 2 虎ノ門ビル 三和国际特許事務所
【氏名又は名称】	佐藤 正年

## 【代理人】

【識別番号】	100099586
【住所又は居所】	東京都港区虎ノ門 1 丁目 21 番 19 号 秀和第 2 虎ノ門ビル 三和国际特許事務所
【氏名又は名称】	佐藤 年哉

特願 2004-084835

ページ： 1/E

出願人履歴情報

識別番号

[000165697]

1. 変更年月日  
[変更理由]  
住所  
氏名

2001年 8月20日  
住所変更  
東京都港区三田三丁目14番10号  
原子燃料工業株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record.**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**